

84158  
 Brevet N°  
 du 18 MAI 1982  
 Titre délivré :

GRAND-DUCHÉ DE LUXEMBOURG



Monsieur le Ministre  
 de l'Économie Nationale et des Classes Moyennes  
 Service de la Propriété Industrielle  
 LUXEMBOURG

## Demande de Brevet d'Invention

### I. Requête

COMMUNAUTÉ EUROPEENNE DE L'ÉNERGIE ATOMIQUE (EURATOM) (1)  
 Bâtiment Jean Monnet, Plateau du Kirchberg, Boîte postale 1907,  
 Luxembourg (2)

à 15<sup>h</sup> dépose ce 18 MAI 1982 (3)  
 heures, au Ministère de l'Économie Nationale et des Classes Moyennes, à Luxembourg :

1. la présente requête pour l'obtention d'un brevet d'invention concernant :

"Appareil et procédé de mesure de la répartition granulométrique et de la  
 concentration massique de particules d'aérosols de combustibles nucléaires" (4)

déclare, en assumant la responsabilité de cette déclaration, que l'(es) inventeur(s) est (sont) :

Stephen PICKERING, Buchering 38, D-7513 Stutensee BL (5)

2. la ~~déclaration de priorité~~ 18

3. la description en langue française de l'invention en deux exemplaires ;

4. 4 planches de dessin, en deux exemplaires ;

5. la quittance des taxes versées au Bureau de l'Enregistrement à Luxembourg,

le 18 MAI 1982

revendique pour la susdite demande de brevet la priorité d'une (des) demande(s) de

(6) brevet no. 81.15483 déposée(s) en (7) Grande-Bretagne

le 20.5.1981 (8)

au nom de EURATOM (9)

élit domicile pour lui (elle) et, si désigné, pour son mandataire, à Luxembourg COMMUNAUTÉ  
EUROPEENNE DE L'ÉNERGIE ATOMIQUE, Bâtiment Jean Monnet, Plateau de Kirchberg (10)  
 Luxembourg

solicite la délivrance d'un brevet d'invention pour l'objet décrit et représenté dans les annexes

susmentionnées, — avec ajournement de cette délivrance à \_\_\_\_\_ mois.

Le Fondé de pouvoir

H. KRONZ

### II. Procès-verbal de Dépôt

La susdite demande de brevet d'invention a été déposée au Ministère de l'Économie Nationale et des Classes Moyennes, Service de la Propriété Industrielle à Luxembourg, en date du :

à 15<sup>h</sup> heures



Pr. le Ministre  
 de l'Économie Nationale et des Classes Moyennes,

p. [Signature]

H 8966 cas 624

JB1/068

Priorité d'une demande de brevet en Angleterre du 20.5.1981,  
no. 81.15483 au nom de la demanderesse

B R E V E T   D ' I N V E N T I O N

Appareil et procédé de mesure de la répartition granulométrique  
et de la concentration massique de particules d'aérosols de combus-  
tibles nucléaires.

COMMUNAUTE EUROPEENNE DE L'ENERGIE ATOMIQUE (EURATOM)

La présente invention concerne un appareil de mesure de la répartition granulométrique et de la concentration massique de particules d'aérosols de combustibles nucléaires, ainsi qu'un procédé de mesure utilisant cet appareil.

5 On connaît dans la technique antérieure divers types d'appareils de mesure, mais tous présentent certains inconvénients.

a) L'appareil de centrifugation d'aérosol.

10 Dans ce cas, l'aérosol pénètre au centre d'une partie découpée de conduite en spirale dans un rotor tournant à des vitesses pouvant atteindre 3000 tr/min. Les grosses particules se déposent sur la paroi de la conduite au voisinage de l'entrée, tandis que les particules plus petites se déposent plus loin dans la conduite, là où l'accélération centripète est plus élevée.

15 De cette manière, les particules sont séparées suivant un spectre correspondant à leurs propriétés aérodynamiques et inertielles. (Voir W. Stöber, H. Flachsbart "Size separating precipitation of aerosols in a spinning spiral duct", Env. Sci. Tech 3 (1966) 1280-1296.) Toutefois, avec cet appareil, on ne mesure pas la concentration massique, les particules plus grandes que 5  $\mu$ m  
20 ne peuvent être séparées, les pertes de particules sont importantes dans l'entrée de l'appareil de centrifugation et dépendent de la taille des particules, et l'utilisateur doit concevoir son propre moyen de détermination de la répartition granulométrique des particules à partir du dépôt sur la paroi de la conduite.

25 b) Le spectromètre inertiel

Dans ce cas, un courant d'aérosol, entouré par un gaz porteur, est envoyé dans un coude brusque faisant 90° et est ensuite aspiré au travers d'un filtre où les particules d'aérosol sont  
30 retenues. Pendant le passage dans le coude de 90°, les grosses particules glissent, relativement au courant de gaz, plus que les petites particules, si bien qu'il apparaît sur le filtre une séparation de particules qui est fonction de leurs propriétés inertielles. (Voir V. Prodi et al. "An inertial spectrometer for aerosol particles", J. Aerosol Sci. 101 (1979) 411-419.)

35 Toutefois, avec cet appareil, l'utilisateur doit imaginer son propre moyen de détermination de la répartition granulométrique des particules à partir du dépôt effectué sur le filtre, la concen-

tration massique n'est pas mesurée, et l'entrée d'aérosol très mince est susceptible de s'obstruer partiellement, ce qui entraîne une figure de dépôt d'aérosol déformée.

c) Le séparateur horizontal par entraînement

5 Dans ce cas, un courant d'aérosol est aspiré dans une fente latérale étroite formée dans la partie supérieure d'une conduite horizontale d'une hauteur d'environ 5 mm, d'une largeur d'environ 50 mm et d'une longueur d'environ 600 mm. Tandis que l'aérosol est transporté le long de la conduite par un courant d'air, des  
10 particules d'aérosol se déposent sur la partie inférieure de la conduite avec des vitesses qui sont proportionnelles à leurs diamètres aérodynamiques, ce qui permet d'effectuer une séparation des particules d'aérosol suivant leurs tailles. (Voir W. Stöber "Zur Bestimmung von Teilchengrößenverteilungen mit einem Horizontal-  
15 Elutriator", Staub 24 (1964) 221-223.)

Toutefois, avec cet appareil, la vitesse d'échantillonnage de l'aérosol est très faible, tout l'appareil doit être isolé thermiquement pour minimiser les courants de convection dans la conduite, l'utilisateur doit imaginer son propre procédé d'obtention  
20 de la répartition granulométrique de particules à partir du dépôt sur la partie inférieure de la conduite, et la concentration massique n'est pas mesurée.

d) Le compteur optique

Dans ce cas, on concentre un faisceau lumineux intense  
25 sur un courant de particules d'aérosol. Les particules d'aérosol traversant le faisceau focalisé créent des impulsions de lumière diffusée, qui sont mesurées par un photodétecteur. La dimension de chaque impulsion lumineuse diffusée et l'amplitude de signal du détecteur sont proportionnelles à la taille des particules de  
30 l'aérosol. (Voir K.T. Whitby, K. Willeke "Single Particle Optical Counters: Principles and Field Use" p. 145-182, "Aerosol Measurement" (1979), University of Florida Press.)

Toutefois, avec cet appareil, la quantité de lumière qui est diffusée par des particules de forme irrégulière dépend de  
35 l'orientation des particules, les particules partiellement éclairées augmentent la concentration apparente en petites particules, tandis

Ky

que l'éclairement coïncidant de particules augmente la concentration apparente en grandes particules, l'appareil étant en outre coûteux.

e) La microbalance de dépôt

5 Dans ce cas, on commence par placer un échantillon de poudre en suspension dans un liquide, puis on laisse déposer sur le plateau immergé d'une microbalance. On peut déduire la répartition granulométrique des particules de la courbe temps-poids cumulé résultante au moyen de la loi de Stokes. (Voir S. Oden, Proc. Roy. Soc. Edinb. 36 (1915) 219, A.E. Jacobsen, W.F. Sullivan, Ind. Eng. Chem. 19 (1947) 855 et W. Bostock, J.Sci. Instr. 29 (1952) 209.)

10 Toutefois, avec cet appareil, il n'est pas facile de mesurer les particules d'une taille inférieure à 5  $\mu\text{m}$  environ, et il faut une concentration massique élevée des particules, si bien  
15 que l'appareil est mieux adapté aux mesures des poudres que des aérosols.

Selon l'invention, il est proposé un appareil permettant de mesurer la répartition granulométrique et la concentration massique de particules d'un aérosol de combustible nucléaire comprenant  
20 un récipient disposé verticalement et destiné à l'aérosol, un moyen permettant de faire entrer l'aérosol dans le récipient, et un détecteur de particules alpha placé ou pouvant être placé à l'intérieur du récipient et possédant une fenêtre de détection disposée horizontalement et dirigée verticalement, de manière à permettre la détection  
25 de l'activité alpha des particules de l'aérosol qui se déposent sur la fenêtre.

L'invention propose également un procédé de mesure de la répartition granulométrique et de la concentration massique des particules d'un aérosol de combustible nucléaire, ce procédé consistant à faire entrer l'aérosol dans un récipient orienté verticalement  
30 destiné à le contenir, à placer un détecteur de particules alpha à l'intérieur du récipient de façon que sa fenêtre de détection soit horizontale et soit dirigée verticalement, à arrêter l'admission de l'aérosol dans le récipient, à détecter l'activité alpha des particules de l'aérosol qui se déposent sur la fenêtre de détection, et  
35 à convertir la mesure d'activité alpha en mesures de répartition

granulométrique et, ou bien, de concentration massique de particules.

Dans l'appareil selon l'invention, on laisse un nuage d'aérosol de combustible nucléaire se déposer sur un détecteur de particules alpha. Lorsque les particules de l'aérosol se déposent sur le détecteur, l'activité alpha mesurée augmente. L'analyse de la courbe de l'activité alpha en fonction du temps, effectuée d'une manière analogue à celle utilisée avec la microbalance de dépôt, permet de calculer la répartition granulométrique des particules. Le fait d'utiliser un détecteur d'activité alpha augmente fortement la sensibilité du procédé par comparaison avec les microbalances de dépôt de la technique antérieure, si bien qu'il est possible d'effectuer des mesures directes sur des nuages d'aérosol de combustible nucléaire contenant des particules d'une taille aussi faible que  $1 \mu\text{m}$ .

La description suivante, conçue à titre d'illustration de l'invention, vise à donner une meilleure compréhension de ses caractéristiques et avantages; elle s'appuie sur les dessins annexés, parmi lesquels :

- la figure 1 est une vue en coupe de l'appareil selon l'invention, prise suivant un plan perpendiculaire à l'axe d'articulation et suivant l'axe du tube, l'appareil étant présenté dans sa position de travail;

- la figure la est une vue simplifiée de l'appareil dans sa position de nettoyage;

- la figure 2 est un graphe montrant les variations de l'activité alpha avec le temps par suite du dépôt de l'aérosol;

- les figures 3A et 3B sont des graphes montrant les répartitions granulométriques de particules d'aérosols de  $\text{UPuO}_2$ , respectivement en poids cumulé et en poids simple; et

- la figure 4 est un graphe montrant les variations de production d'aérosol de  $\text{UPuO}_2$  à partir de pastilles de combustible.

On voit sur la figure 1 que l'appareil comprend un tube circulaire 1, d'une hauteur d'environ 400 mm et d'un diamètre d'environ 60 mm, au travers duquel l'aérosol 2 est aspiré par une pompe (non représentée) raccordée à une sortie 3. Un détecteur d'activité alpha 4, du type disponible dans le commerce, est monté au centre

du courant d'aérosol sur un bras 5, raccordé au tube 1 par une charnière d'articulation 6. Le détecteur 4 est maintenu dans un boîtier 4a résistant au rayonnement alpha et il est du type à "barrière de surface". Le boîtier 4a possède une barrière de surface 4b, formant une fenêtre de détection, laquelle barrière est disposée de manière à s'étendre horizontalement et à être dirigée verticalement lorsque le détecteur est dans sa position de travail, de sorte que les particules de l'aérosol peuvent se déposer sur la fenêtre et que leur activité alpha peut être mesurée. Le bras 5 possède un contrepoids 7 assurant que le détecteur 4 est normalement maintenu sa face vers le haut du tube 1. En soulevant le contrepoids 7, comme cela est représenté sur la figure 1a, on peut commodément abaisser le détecteur 4 pour effectuer un nettoyage au moyen d'un jet (non représenté) de gaz comprimé. Le détecteur 4 est relié par un câble coaxial 8 à un équipement classique de comptage de particules alpha (non représenté).

Le procédé de mesure utilisant l'appareil de l'invention est le suivant.

On met en marche la pompe d'échantillonnage (non représentée) et on fait aspirer l'aérosol dans le tube 1 pendant environ 2 minutes avec un débit d'environ 10 litres par minute. On arrête alors la pompe et l'aérosol commence à se déposer dans le tube par gravité. Le comptage alpha commence peu avant l'arrêt de la pompe, et l'activité alpha est enregistrée sur de brefs intervalles de temps successifs (typiquement de 1 à 10 s) jusqu'à ce qu'un niveau constant d'activité alpha ait été enregistré (typiquement de 15 à 20 min). Le fait d'enregistrer l'activité alpha de cette manière permet d'obtenir efficacement la dérivée de la courbe de l'activité cumulée en fonction du temps. La dérivée de la courbe de l'activité cumulée en fonction du temps est équivalente à un tracé du poids cumulé en fonction du temps, et les données peuvent être évaluées au moyen des techniques mises au point pour la balance de dépôt, par exemple le procédé d'Oden des interceptions tangentielles. L'activité finale mesurée sur le détecteur est proportionnelle à la masse des particules se trouvant sur le détecteur, si bien que la concentration massique des particules de l'aérosol peut également être calculée si l'on connaît la composition isotopique de l'aérosol et le rendement du détecteur.

Des avantages de l'appareil et du procédé décrits sont que les résultats peuvent être obtenus rapidement, en particulier si l'on fait appel à un ordinateur pour traiter les données, la répartition de poids des particules de l'aérosol peut être obtenue  
 5 directement à la fois en fonction du diamètre de Stokes et du diamètre aérodynamique des particules, la concentration massique peut également être obtenue pour des matières de composition isotopique connue, tandis que l'appareil est simple, relativement peu coûteux, robuste et facile à utiliser dans les conditions de mani-  
 10 pulation à distance qui sont nécessaires pour les combustibles nucléaires, par exemple au cours de leur fabrication, de leur utilisation et de leur retraitement.

#### Exemple

Au moyen de l'appareil décrit, on effectue un essai  
 15 dans lequel l'aérosol de combustible nucléaire est produit par mise en vibration d'un creuset d'aluminium perforé contenant des pastilles de combustible de  $UPuO_2$  dans un courant gazeux en amont de l'appareil. On met en marche le générateur d'aérosol et on aspire le gaz vers le haut au moyen de la pompe à 19 mm/s de façon à trans-  
 20 porter un courant de particules d'aérosol devant le détecteur. Lorsqu'un courant stationnaire est créé (3 minutes), on arrête le générateur et le courant gazeux et on fait commencer le comptage alpha. Puisque les particules d'aérosol se trouvant dans le tube au-dessus du détecteur se déposent, l'activité alpha enregistrée  
 25 par le détecteur augmente en fonction du temps, ainsi que cela est présenté sur la figure 2.

Pour autant qu'il n'y ait pas d'auto-absorption notable des particules alpha à l'intérieur du dépôt d'aérosol se trouvant sur le détecteur, on peut supposer que l'activité alpha enregistrée  
 30 est proportionnelle à la masse du dépôt. La courbe de la figure 2 donnant l'activité en fonction du temps est donc équivalente à une courbe donnant le poids cumulé en fonction du temps, et l'on peut appliquer les traitements mathématiques connus mis au point pour les balances de dépôt.

35 Les courbes de l'activité mesurée en fonction du temps sont traitées à l'aide du procédé d'Oden des intersections tangentielles, à savoir :

$$100 \int_0^D F(D)dD = 100 - \text{interception tangentielle (1)}$$

où  $F(D)dD$  est égal à la fraction massique de particules ayant un diamètre compris entre  $D$  et  $D+dD$  et où l'interception tangentielle désigne l'interception de la tangente de la courbe activité-temps avec l'axe  $y$ , exprimée sous forme d'un pourcentage de l'activité finale.

On obtient la correspondance entre l'instant du dépôt et le diamètre de la particule par application de la force de frottement (loi de Stokes) à la force de pesanteur s'exerçant sur les particules, à savoir :

$$D = \sqrt{\frac{18\eta h}{\lambda gt}} \quad (2)$$

où

$D$  est le diamètre de Stokes de la particule,

$\eta$  est la viscosité du gaz d'aérosol,

$g$  est la constante de l'accélération de la pesanteur,

$\lambda$  est la densité de la matière des particules de l'aérosol,

$t$  est l'instant du dépôt,

$h$  est la distance de dépôt.

En traçant  $\int_0^D F(D)dD$  en fonction de  $D$ , on obtient la répartition pondérale cumulée qui est présentée sur la figure 3A, à partir de laquelle on peut déduire une courbe de répartition pondérale simple, si cela est nécessaire, comme cela est montré sur la figure 3B. On obtient simplement la répartition pondérale en fonction du diamètre aérodynamique en multipliant le diamètre de Stokes, soit  $D$ , par  $\sqrt{\lambda}$ . On peut obtenir les interceptions tangentielles des courbes activité-temps avec le maximum de précision lorsque la courbure des tracés est maximale. La courbure maximale correspond à la gamme de diamètres de particules pour laquelle la fraction massique est la plus élevée, c'est-à-dire au pic de la courbe de répartition pondérale simple et, par conséquent, à la partie la plus intéressante de la répartition granulométrique. Au contraire, la fraction massique correspondant aux extrémités supérieure et inférieure de la répartition granulométrique est faible

si bien que la précision de la répartition pondérale est plus faible qu'au niveau du pic.

Du fait que l'activité alpha enregistrée est proportionnelle à la masse des particules d'aérosol déposées, il est possible de calculer la concentration massique des particules de l'aérosol dans la mesure où l'on connaît la composition isotopique de la matière de l'aérosol et le rendement du détecteur.

On a effectué des expériences de dépôt au moyen d'aérosols produits par mise en vibration de pastilles de  $UPuO_2$  frittées sous diverses amplitudes. La courbe typique donnant l'activité alpha en fonction du temps, qui est présentée sur la figure 2, est la moyenne de quatre expériences successives effectuées dans des conditions identiques. Il apparaît que la reproductibilité des données est satisfaisante. A l'aide du procédé d'Oden des interceptions tangentielles, on trouve que le diamètre des particules de masses moyennes, soit  $d'_m$ , augmente légèrement avec l'accroissement de l'amplitude de vibration entre 2,3 et 2,5  $\mu m$  sur la gamme étudiée. L'amplitude de vibration la plus faible (courbe a des figures 3A et 3B) conduit à des aérosols ayant une répartition granulométrique de particules qui est approximativement du type log-normal ( $\sigma = 1,4 \mu m$ ). Toutefois, lorsque l'amplitude de vibration augmente, la proportion de grosses particules s'accroît, si bien que les répartitions deviennent franchement biaisées au lieu d'être du type log-normal (courbes b et c des figures 3A et 3B).

	Amplitude des vibrations à 50 Hz (mm)	$d'_m$ ( $\mu m$ )	Concentration massique relative
a	1	2,30	1
b	1,8	2,35	2,15
c	2,9	2,50	2,56

Comme on peut le voir sur la figure 4, la quantité d'aérosol produite, telle qu'elle est mesurée par l'activité alpha finale sur le compteur, apparaît augmenter avec l'amplitude de vibration dès qu'un seuil correspondant à une accélération maximale de 5g a été dépassé.

Dans la description, le mot "aérosol" a été utilisé. Toutefois, il ne faut pas comprendre que l'invention se limite à l'utilisation d'un système de particules "colloïdales". Toute dispersion de particules dans un fluide porteur peut être utilisé,  
5 le fluide préféré étant un gaz, plutôt qu'un liquide.

Bien entendu, l'homme de l'art sera en mesure d'imaginer, à partir de l'appareil et du procédé dont la description vient d'être donnée à titre simplement illustratif et nullement limitatif, diverses variantes et modifications ne sortant pas du  
10 cadre de l'invention.

REVENDEICATIONS

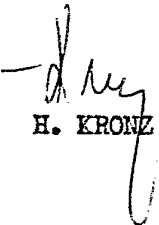
1. Appareil de mesure de la répartition granulométrique et de la concentration massique de particules d'un aérosol de combustible nucléaire, caractérisé en ce qu'il comprend un récipient orienté verticalement (1) destiné à l'aérosol (2), un moyen (3) servant à faire entrer l'aérosol dans le récipient, et un détecteur (4) de particules alpha placé ou pouvant être placé à l'intérieur du récipient et possédant une fenêtre de détection (4b) disposée horizontalement et dirigée verticalement, de façon à permettre la détection de l'activité alpha des particules de l'aérosol qui se déposent sur la fenêtre.  
5
2. Appareil selon la revendication 1, caractérisé en ce que le récipient a la forme d'un tube (1) dont l'axe est vertical, et en ce que le moyen permettant d'introduire l'aérosol dans le récipient est une pompe d'aspiration raccordée à l'extrémité supérieure (3) du tube.  
10
3. Appareil selon la revendication 1 ou 2, caractérisé en ce que des moyens sont prévus pour le nettoyage de la fenêtre de détection du détecteur entre les mesures.  
15
4. Appareil selon la revendication 3, caractérisé en ce que le détecteur est mobile à l'intérieur du récipient entre une position de mesure et une position de nettoyage.  
20
5. Appareil selon la revendication 3 ou 4, caractérisé en ce que le moyen de nettoyage consiste en un jet de gaz.
6. Procédé de mesure de la répartition granulométrique et de la concentration massique de particules d'un aérosol de combustible nucléaire, le procédé étant caractérisé en ce qu'il consiste à faire entrer l'aérosol dans un récipient orienté verticalement destiné à le contenir, à placer un détecteur de particules alpha à l'intérieur du récipient de façon que sa fenêtre de détection soit horizontale et dirigée verticalement, à arrêter l'admission d'aérosol dans le récipient, à mesurer l'activité alpha des particules de l'aérosol se déposant sur la fenêtre de détection, et à convertir les mesures d'activité alpha en mesures de répartition granulométrique et, ou bien, de concentration massique des  
25  
30  
35

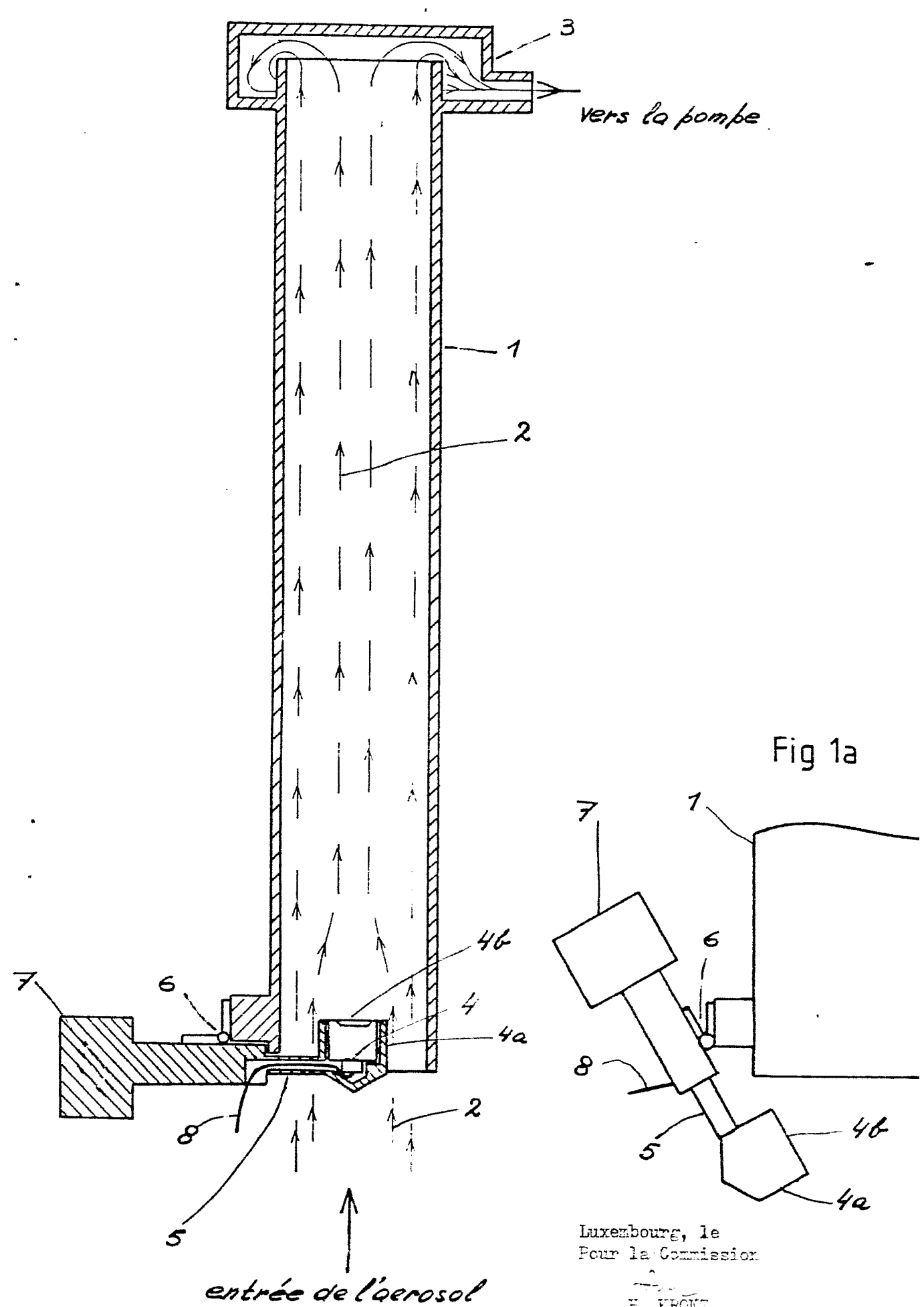
7. Procédé selon la revendication 6, caractérisé en ce que l'opération de mesure de l'activité alpha commence avant l'arrêt de l'introduction de l'aérosol.

8. Procédé selon la revendication 6 ou 7, caractérisé en ce que l'on enregistre l'activité alpha des particules se déposant sur des intervalles relativement brefs successifs jusqu'à ce qu'un niveau d'activité alpha constant ait été enregistré, de façon à obtenir la dérivée de la courbe donnant l'activité alpha cumulée en fonction du temps.

9. Procédé selon la revendication 6, 7 ou 8, caractérisé en ce que l'on répète le processus plusieurs fois de manière à obtenir une mesure moyenne, la fenêtre de détection du détecteur étant nettoyée au moyen d'un jet de gaz entre les mesures.



  
H. KRONZ



Luxembourg, le  
 Pour la Commission

H. HROCKZ

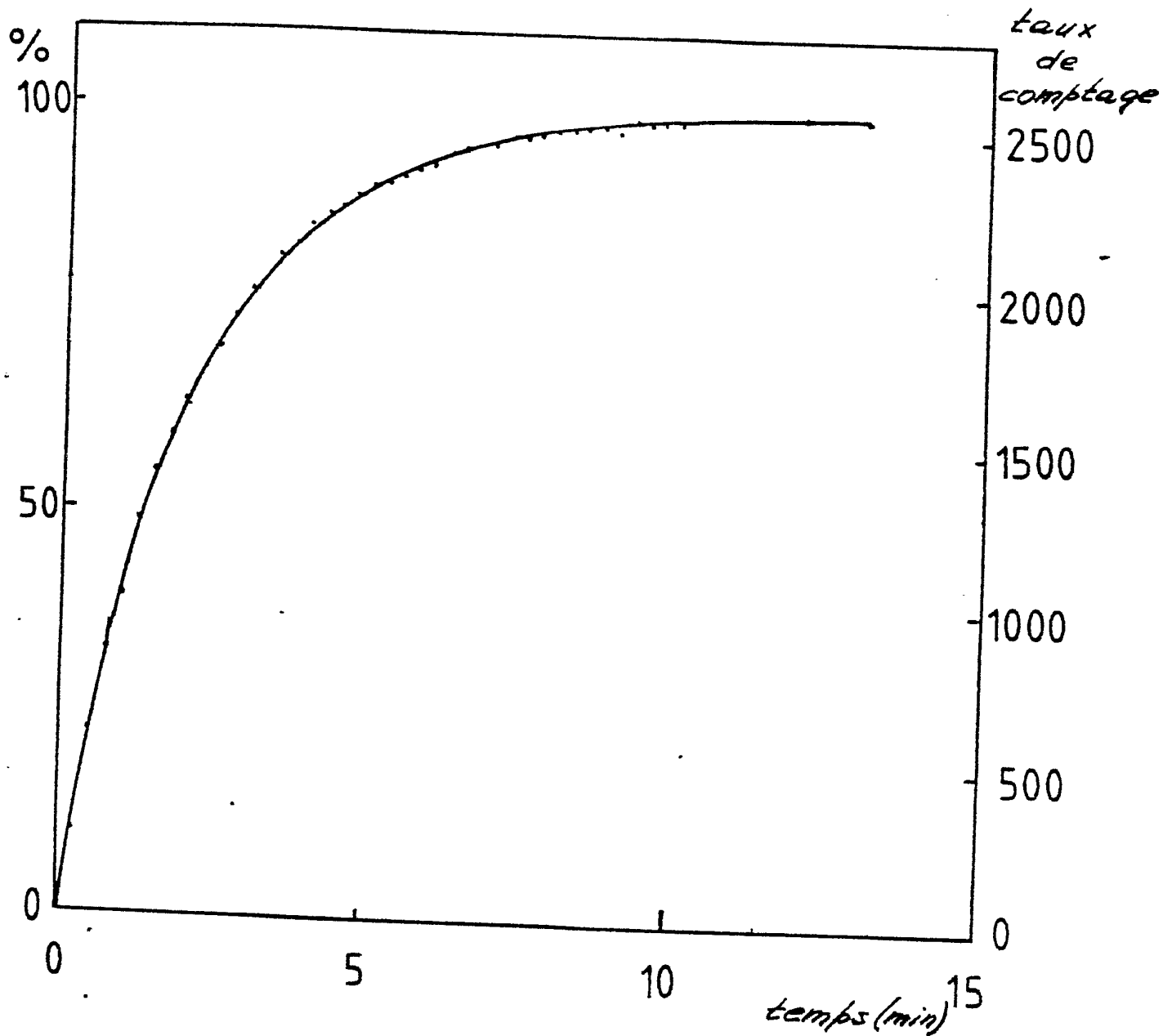


Fig. 2 Augmentation de l'activité  $\alpha$  avec le temps par suite du dépôt de l'aérosol ( $UPuO_2$ )

Luxembourg, le  
Pour la Commission

*E. Krome*  
E. KROME

Fig. 3a

$d'$ , diamètre aérodynamique ( $\mu\text{m}$ )

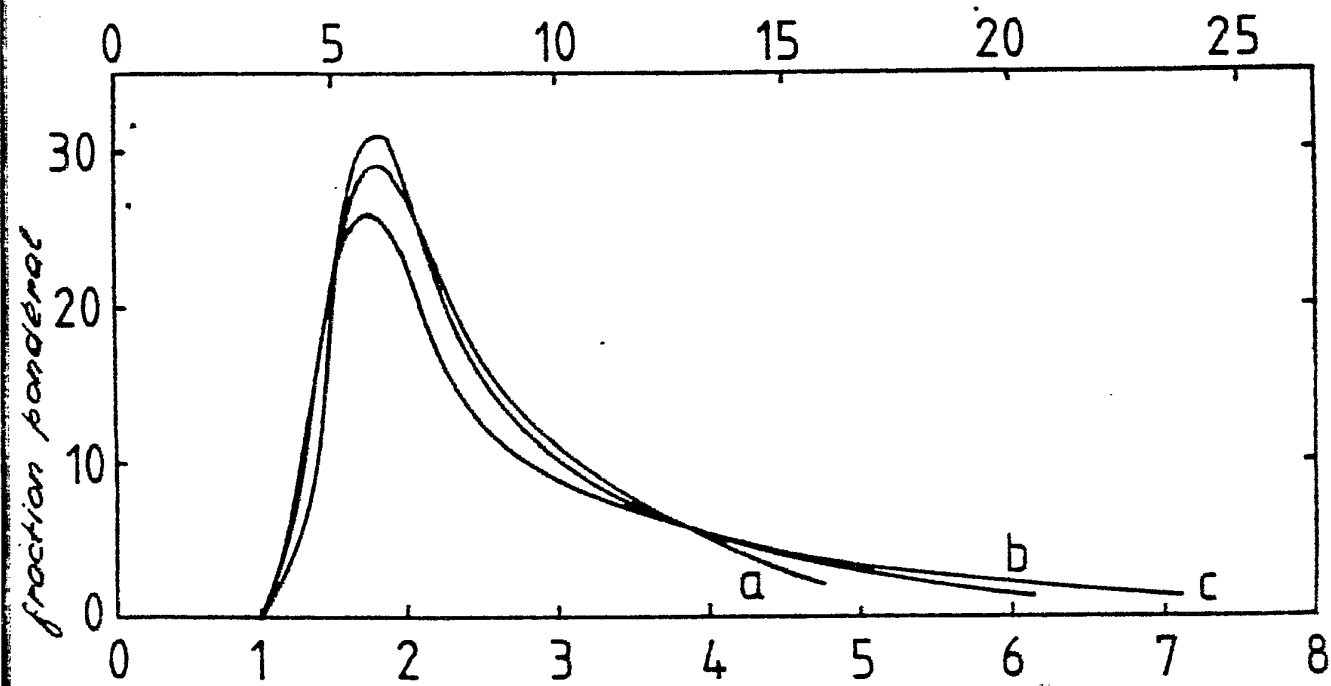
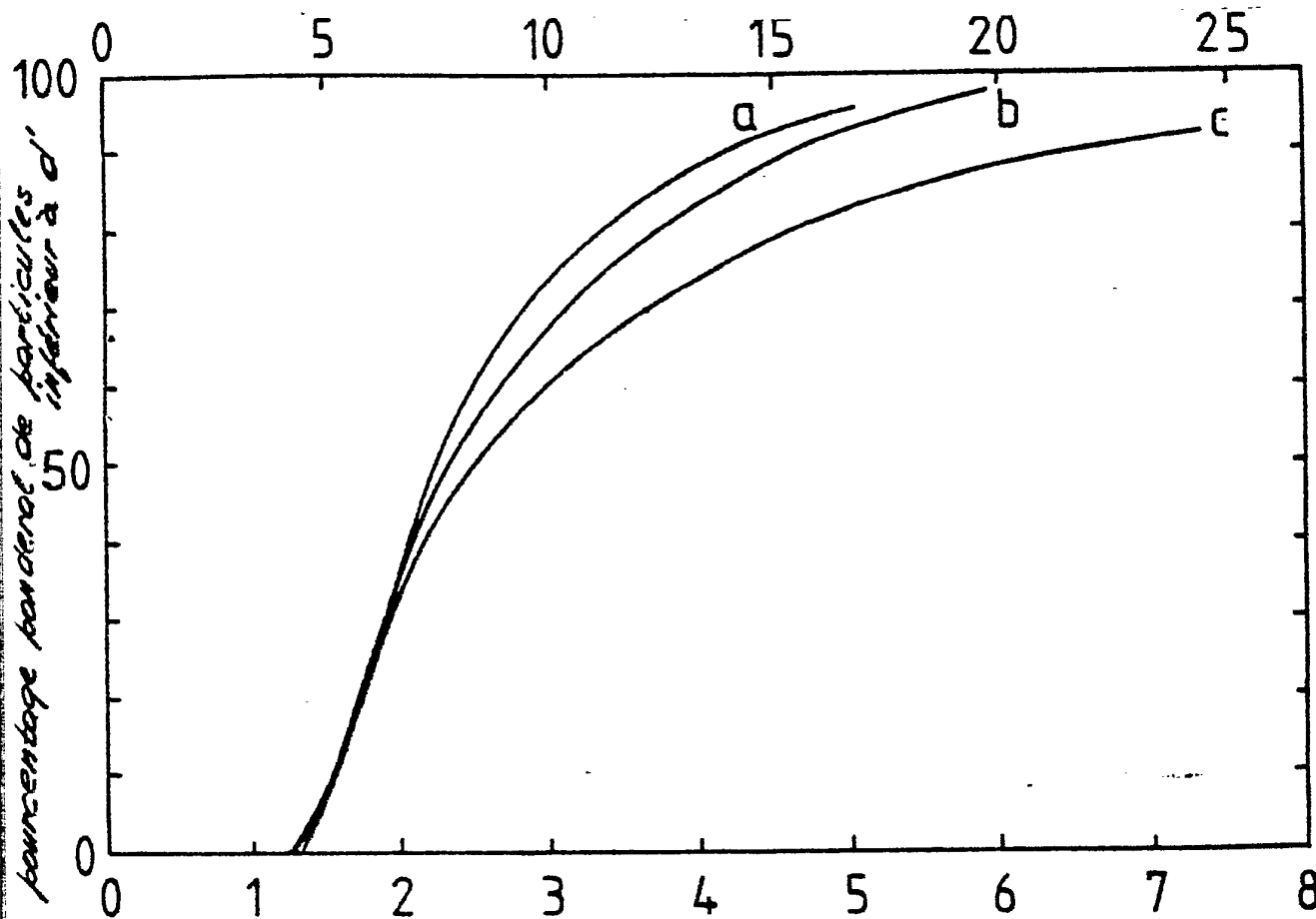
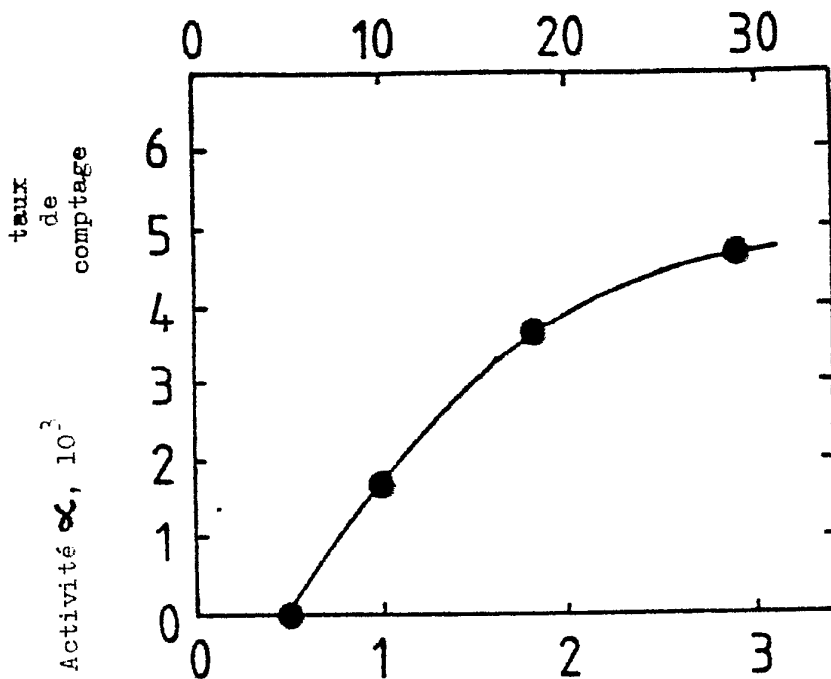


Fig. 3b

$d$ , diamètre de Stokes ( $\mu\text{m}$ )

Luxembourg, le  
Pour la Commission.

Accélération du dispositif vibrant (g)



Amplitude de vibration (mm)

Fig. 4 Variation de la production d'aérosol de  $UPuO_2$   
à partir de pastilles de combustible

Luxembourg, le  
Pour la Commission

*E. HROUZ*  
E. HROUZ